#### (19) 世界知的所有権機関 国際事務局



# 

(43) 国際公開日 2003年3月13日(13.03.2003)

PCT

## (10) 国際公開番号 WO 03/020858 A1

C10M 171/00, 135/18, 135/20, (51) 国際特許分類7: 135/36, 137/02, 137/10 // C10N 10:04, 40:04

(21) 国際出願番号:

PCT/JP02/07207

(22) 国際出願日:

2002年7月16日 (16.07.2002)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ: 2001年8月30日(30.08.2001) 特願2001-262497

- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 新日本石 油株式会社 (NIPPON OIL CORPORATION) [JP/JP]; 〒105-8412 東京都港区 西新橋一丁目3番12号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 /米国についてのみ): 有本 直純 (ARI-MOTO,Naozumi) [JP/JP]; 〒231-0815 神奈川県 横浜市

中区千鳥町8番地 新日本石油株式会社内 Kanagawa (JP).

- (74) 代理人: 森田 順之,外(MORITA,Nobuyuki et al.); 〒 105-0003 東京都港区西新橋 三丁目5番8号 渡瀬ビ ル Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ 特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特

/続葉有/

(54) Title: LUBRICATING OIL COMPOSITION FOR AUTOMATIC TRANSMISSION

(54) 発明の名称: 自動変速機用潤滑油組成物

(57) Abstract: A lubricating oil composition for an automatic transmission which has a mass ratio for phosphorus: calcium: boron : sulfur of 1: (0.1 - 2): (0.06 - 2): (0.2 - 20), a concentration of phosphorus of 0.01 to 0.06 mass %, a concentration of the sulfur derived from a base oil of 0 to 0.1 mass %, a concentration of the sulfur derived from sulfur-containing additives of 0. 01 to 0.15 mass %, all ratios and concentrations being based on the total amount of the composition and determined by elemental analysis. The lubricating oil composition can be used for achieving the prevention of scratching phenomenon in a metal belt type automatic transmission even over a long period of time.

(57) 要約:

金属ベルト式無段変速機に用いた場合に、スクラッチ現象を防止し、長期間に 渡りこれを防止し得る自動変速機用潤滑油組成物として、組成物全量基準におけ る元素分析値で、リン:カルシウム:ホウ素:イオウの元素比が、質量比で、1: (0.1~2):(0.06~2):(0.2~20)であり、かつ組成物全量基準 におけるリン元素濃度が0.01~0.06質量%であり、かつ基油に由来する イオウ濃度が0~0.1質量%、イオウ系添加剤に由来するイオウ濃度が0.0 1~0.15質量%であることを特徴とする自動変速機用潤滑油組成物が提供さ れる。



許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 添付公開書類:

一 国際調査報告書

## 明 細 書

## 自動変速機用潤滑油組成物

#### 「技術分野]

本発明は自動変速機用潤滑油組成物に関し、詳しくは自動車のベルト式CVTに適用した場合に $\mu$ -V特性を正勾配にしてスクラッチノイズの発生を防止することができ、さらに $\mu$ -V特性を長期間正勾配に保持し得るベルト式CVTに有利に用いることができる自動変速機用潤滑油組成物に関する。

## [背景技術]

現在自動車用の自動変速機はロックアップクラッチ付きトルクコンバータと湿式クラッチと遊星歯車を組み合わせた変速部および油圧制御部からなるものが広く採用されているが、有段変速であるために燃費効率が悪くまた変速ショックによる不快感といった欠点がある。この欠点を補うものとして金属ベルトを介して動力を伝達し、無段階変速する無段変速機(ベルト式CVT)が実用化されている。

ベルト式CVTは、駆動プーリと被駆動プーリおよび動力を伝達するためのベルトとから構成され、ベルトはエレメント(以下、コマと称する)とそれを保持するベルト(鋼帯)より構成されている。このようなベルト式CVTに用いる潤滑油としては、冷却性、潤滑性、耐摩耗性を有し、かつ変速機を構成する材料に共通点が多いことなどから、従来から有段の自動変速機(AT)に充填されるATF(Automatic Transmission Fluid)が広く使われてきた。しかしながら、近年ベルトCVTを用いた自動車においては、ある種のものについては、例えば、車庫入れ、発進時等に特有の雑音(スクラッチノイズ)が発生する現象、いわゆるスクラッチ現象が生じることがわかっている。

このスクラッチ現象は、CVTの後にある歯車の歯打ち音によるものであり、 これは被駆動プーリの回転むらにその原因があることが既に見出されている。更 に、その回転むらはベルトとコマの摩擦係数(μ)の変化が滑り速度(V)の変

化に対して負勾配にある時に発生することも見出されている(例えば、特開平9 - 263782号公報)。従来からベルト式CVTに充填されてきたATFはμ-V特性が必ずしも良好ではなく、また長期間使用した場合のμ-V特性の変動が大きいため、スクラッチノイズを完全に防止することができず、その結果、スクラッチ現象が発生しやすかった。

ATFでこのようなスクラッチ現象を完全に防止するためには、上記 $\mu$  – V特性が必ず正勾配になるようなATF配合技術を開発することが必要であり、更に、このような要求性能は新油時のみならず、一定期間走行した後の潤滑油においてもその性能を満たし、長期間そのような性能が保持されていることが望まれる。一定期間走行した後の潤滑油は酸化劣化が進行し、特に潤滑油中にイオウ分を比較的多く含む場合に上記 $\mu$  – V特性が低下しやすくなることがわかった。

従って、本発明の課題は、ベルト式CVTのμ-V特性を正勾配にしてスクラッチ現象を防止すると共に、長期間μ-V特性を正勾配に保持することのできるベルト式CVTにも好適な自動変速機用潤滑油組成物を提供することにある。

#### [発明の開示]

本発明者は前記課題を解決するために鋭意検討した結果、特定の添加剤を特定の元素比となるように配合した組成物が、前記課題を解決できることを見出し本発明を完成するに至った。

本発明は、組成物全量基準における元素分析値で、リン:カルシウム:ホウ素: イオウの元素比が、質量比で、1:(0.1~2):(0.06~2):(0.2~20)であり、かつ組成物全量基準におけるリン元素濃度が0.01~0.06 質量%であり、基油に由来するイオウ濃度が0~0.1質量%、そしてイオウ系添加剤に由来するイオウ濃度が0.01~0.15質量%であることを特徴とす、る自動変速機用潤滑油組成物にある。

本発明の潤滑油組成物は、組成物全量基準における元素分析値で、リン:カルシウム:ホウ素:イオウの元素比が、質量比で、1:(0.1~1):(0.1~0.8):(0.4~5)であり、かつ組成物全量基準におけるリン元素濃度が0.02~0.05質量%であり、基油に由来するイオウ濃度が0~0.1質量%、

そしてイオウ系添加剤に由来するイオウ濃度が 0.01~0.15質量%であることが好ましい。

本発明の潤滑油組成物に含まれるイオウ系添加剤が、(A) チアジアゾール及び/またはベンゾチアゾール、(B) ジチオカーバメート、(C) ジチオホスフェート、(D) トリチオホスファイト、及び(E) ポリスルフィド、又は(A) ~(E) の誘導体から選ばれる少なくとも1種の化合物であることが好ましい。

以下、本発明を詳述する。

本発明の自動変速機用潤滑油組成物は、潤滑油基油に、リン、カルシウム、ホウ素、及び硫黄の各元素が含まれてなるものであり、これらの元素のうちイオウは、組成物中の基油、あるいは添加剤、例えば、イオウ系添加剤および/またはカルシウム清浄剤のうちカルシウムスルホネート又はカルシウムフェネートに由来するものであり、またその他の元素は、例えば、リン元素はリン系添加剤及び一部のイオウ系添加剤、カルシウム元素はカルシウム系清浄剤、ホウ素元素はホウ酸変性コハク酸イミド及び/又はアルカリ金属ホウ酸塩若しくはその水和物の各添加剤にそれぞれ由来するものである。以下にこれらの成分について順に説明する。

#### (1) 基油

本発明の自動変速機用潤滑油組成物における潤滑油基油としては、通常の潤滑油の基油として用いられる任意の鉱油及び/又は合成油が使用できる。

鉱油としては、具体的には例えば、原油を常圧蒸留及び減圧蒸留して得られた 潤滑油留分を、溶剤脱れき、溶剤抽出、水素化分解、溶剤脱ろう、接触脱ろう、 水素化精製、硫酸洗浄、及び白土処理等の精製処理等を単独あるいは適宜組み合 わせて精製したパラフィン系、ナフテン系等の油やノルマルパラフィン等を挙げ ることができる。

また合成油としては、特に制限はないが、ポリーαーオレフィン(例えば、1ーオクテンオリゴマー、1ーデセンオリゴマー、エチレンープロピレンオリゴマー等)若しくはその水素化物、イソブテンオリゴマー若しくはその水素化物、イソパラフィン、アルキルベンゼン、アルキルナフタレン、ジエステル(例えば、

ジトリデシルグルタレート、ジ2-エチルヘキシルアジペート、ジイソデシルアジペート、ジトリデシルアジペート、及びジ2-エチルヘキシルセバケート等)、ポリオールエステル (例えば、トリメチロールプロパンカプリレート、トリメチロールプロパンペラルゴネート、ペンタエリスリトール2-エチルヘキサノエート、及びペンタエリスリトールペラルゴネート等)、ポリオキシアルキレングリコール、ジアルキルジフェニルエーテル、及びポリフェニルエーテル等を挙げることができる。

潤滑油基油の動粘度は、特に制限はないが、100 Cにおける動粘度は、 $1\sim 10\,\mathrm{mm}^2/\mathrm{s}$  であることが好ましく、より好ましくは $2\sim 8\,\mathrm{mm}^2/\mathrm{s}$  である。また基油に由来する潤滑油中のイオウ濃度は、0.1 質量%以下であり、好ましくは、0.05 質量%以下、更に好ましくは、0.05 質量%以下である。イオウ濃度が0.1 質量%を超える場合には長時間にわたって安定した $\mu-V$ 特性を維持することが困難となる。

#### (2) イオウ系添加剤

本発明で用いることができるイオウ系添加剤としては、下記(A)~(E)で 示される化合物を挙げることができる。

(A) チアジアゾール及び/またはベンゾチアゾール

チアジアゾールとしては、具体的には例えば、下記の一般式(1)で表される 化合物等が挙げられる。

一般式(1)において、 $R^1$ は、炭素数 $1\sim30$ 、好ましくは $6\sim240$ 、直鎖状または分枝状のアルキル基を示し、 $R^2$ は、水素原子または炭素数 $1\sim30$ の直鎖状または分枝状のアルキル基、好ましくは水素原子または炭素数 $1\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルキル基を示し、aおよびbはそれぞれ別個に、1、2又は3を示し、好ましくは1又は2である。

ベンゾチアゾールとしては、具体的には、下記の一般式(2)で表される化合物等が挙げられる。

$$(R^3)_{\overline{c}} \longrightarrow (S)_{\overline{d}} R^4$$
 (2)

一般式 (2) において、R  $^3$  は炭素数  $1\sim 4$  の直鎖状または分枝状のアルキル基、好ましくはメチル基またはエチル基を示し、R  $^4$  は炭素数  $1\sim 3$  0、好ましくは  $6\sim 2$  4 の、直鎖状または分枝状のアルキル基を示し、c は  $0\sim 3$  の整数、好ましくは 0 又は 1 を示し、d は  $1\sim 3$  の整数、好ましくは 1 又は 2 を示す。

(A) 成分を含有させる場合、上記一般式(1)及び(2)で表される化合物の中から選ばれる一種の化合物を単独で用いても良く、異なる構造を有する2種以上の化合物を併用しても良い。

#### (B) ジチオカーバメート

ジチオカーバメートとしては、任意のジチオカーバメートが使用可能であるが、 下記の一般式(3)又は一般式(4)で表される化合物が好ましい具体例として 挙げられる。

一般式(3)及び(4)において、 $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$ 及び $R^{10}$ はそれぞれ個別に、炭素数 $1\sim30$ 、好ましくは $1\sim20$ の炭化水素基を示し、Xは、S(硫黄原子)又はメチレン基( $-CH_2-$ )を示し、そして e は $0\sim6$ の整数を示す。

上記R<sup>5</sup>~R<sup>10</sup>で表される炭素数1~30の炭化水素基としては、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アルキルシクロアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルキルアリール基、及びアリールアルキル基を挙げることができる。

上記アルキル基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブ チル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル 基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル 基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基等のアルキル基(これら アルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい)を挙げることができる。

上記シクロアルキル基としては、具体的には、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等の炭素数5~7のシクロアルキル基を挙げることができる。

上記アルキルシクロアルキル基としては、具体的には、メチルシクロペンチル基、ジメチルシクロペンチル基、メチルエチルシクロペンチル基、ジエチルシクロペンチル基、メチルンクロペキシル基、メチルンクロペキシル基、メチルエチルシクロペキシル基、ジエチルシクロペナシル基、メチルシクロペプチル基、ジメチルシクロペプチル基、ジメチルシクロペプチル基、ジェチルシクロペプチル基、ジェチルシクロペプチル基等の炭素数6~11のアルキルシクロアルキル基(アルキル基のシクロアルキル基への置換位置も任意である)を挙げることができる。

上記アルケニル基としては、具体的には、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノネニル基、デセニル基、ウンデセニル基、ドデセニル基、トリデセニル基、テトラデセニル基、ペンタデセニル基、ヘキサデセニル基、ヘプタデセニル基、オクタデセニル基等のアルケニル基(これらアルケニル基は直鎖状でも分枝状でもよく、また二重結合の位置も任意である)を挙げることができる。

上記アリール基としては、具体的には、フェニル基、ナフチル基等のアリール 基を挙げることができる。

上記アルキルアリール基としては、具体的には、トリル基、キシリル基、エチルフェニル基、プロピルフェニル基、ブチルフェニル基、ペンチルフェニル基、ヘキシルフェニル基、ヘプチルフェニル基、オクチルフェニル基、ノニルフェニル基、デシルフェニル基、ウンデシルフェニル基、ドデシルフェニル基等の炭素数7~18のアルキルアリール基(アルキル基は直鎖状でも分枝状でもよく、またアリール基への置換位置も任意である)を挙げることができる。

上記アリールアルキル基としては、具体的には、ベンジル基、フェニルエチル 基、フェニルプロピル基、フェニルブチル基、フェニルペンチル基、フェニルへ キシル基等の炭素数 7~12のアリールアルキル基(これらアルキル基は直鎖状 でも分枝状でもよい)を挙げることができる。

これらの(B)成分は、1種類あるいは2種類以上を任意に配合することができる。

#### (C) ジチオホスフェート

ジチオホスフェートとしては、下記の一般式 (5) で表される化合物の中から 選ばれる1種のジアルキルジチオリン酸又は2種類以上のジアルキルジチオリン 酸混合物を挙げることができる。

$$\begin{array}{ccc}
R^{11} & S & S \\
R^{12} & SH & SH
\end{array}$$
(5)

一般式(5)において、 $R^{11}$ 及び $R^{12}$ は、それぞれ個別に、炭素数  $2 \sim 30$ 、好ましくは  $3 \sim 20$ の炭化水素基を示す。 $R^{11}$ 及び $R^{12}$ で表される  $2 \sim 30$ の炭化水素素基としては、前記一般式(3)における  $R^{5} \sim R^{8}$ で表される炭化水素基の例と同じものを挙げることができる。

#### (D) トリチオホスファイト

トリチオホスファイトとしては、炭素数  $2 \sim 30$ 、好ましくは  $3 \sim 20$ の炭化水素基を含有するトリチオホスファイト化合物を挙げることができる。上記  $2 \sim 30$ の炭化水素素基としては、前記一般式 (3) における  $R^5 \sim R^8$ で表される炭化水素基の例と同じものを挙げることができる。

#### (E) ポリスルフィド

ポリスルフィドは一般にジヒドロカルビルポリスルフィド又は硫化オレフィン と呼ばれる硫黄系化合物であり、具体的には下記一般式(6)で表される。

$$R^{13} - S_f - R^{14}$$
 (6)

一般式(6)において、 $R^{13}$ 及び $R^{14}$ はそれぞれ別個に、炭素数  $3\sim 20$ の直鎖状又は分枝状のアルキル基、炭素数  $6\sim 20$ のアリール基、炭素数  $6\sim 20$ 

のアルキルアリール基あるいは炭素数 $6\sim20$ のアリールアルキル基を示し、fは $2\sim6$ 、好ましくは $2\sim5$ の整数を示す。

上記R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>で表されるアルキル基としては、具体的には、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、直鎖又は分枝ペンチル基、直鎖又は分枝へキシル基、直鎖又は分枝へからル基、直鎖又は分枝ノニル基、直鎖又は分枝グランル基、直鎖又は分枝がデシル基、直鎖又は分枝がデシル基、直鎖又は分枝がデシル基、直鎖又は分枝がデシル基、直鎖又は分枝ペンタデシル基、直鎖又は分枝ペンタデシル基、直鎖又は分枝ペンタデシル基、直鎖又は分枝へキサデシル基、直鎖又は分枝へプタデシル基、直鎖又は分枝オクタデシル基、直鎖又は分枝ノナデシル基、直鎖又は分枝イコシル基を挙げることができる。

上記R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>で表されるアリール基としては、具体的には、フェニル基、 ナフチル基などを挙げることができる。

上記R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>で表されるアルキルアリール基としては、具体的には、ト リル基 (全ての構造異性体を含む)、エチルフェニル基 (全ての構造異性体を含 む)、直鎖又は分枝プロピルフェニル基(全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分 枝ブチルフェニル基 (全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝ペンチルフェニ ル基 (全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝へキシルフェニル基 (全ての構 造異性体を含む)、直鎖又は分枝ヘプチルフェニル基(全ての構造異性体を含む)、 直鎖又は分枝オクチルフェニル基 (全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝ノ ニルフェニル基 (全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝デシルフェニル基 (全 ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝ウンデシルフェニル基(全ての構造異性 体を含む)、直鎖又は分枝ドデシルフェニル基 (全ての構造異性体を含む)、キシ リル基 (全ての構造異性体を含む)、エチルメチルフェニル基 (全ての構造異性 体を含む)、ジエチルフェニル基(全ての構造異性体を含む)、ジ(直鎖又は分枝) プロピルフェニル基(全ての構造異性体を含む)、ジ(直鎖又は分枝)ブチルフ エニル基 (全ての構造異性体を含む)、メチルナフチル基 (全ての構造異性体を 含む)、エチルナフチル基(全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝プロピルナ フチル基(全ての構造異性体を含む)、直鎖又は分枝ブチルナフチル基(全ての

構造異性体を含む)、ジメチルナフチル基(全ての構造異性体を含む)、エチルメ チルナフチル基(全ての構造異性体を含む)、ジエチルナフチル基(全ての構造 異性体を含む)、ジ(直鎖又は分枝)プロピルナフチル基(全ての構造異性体を 含む)、ジ(直鎖又は分枝)ブチルナフチル基(全ての構造異性体を含む)など を挙げることができる。

上記R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>で表されるアリールアルキル基としては、具体的には、ベンジル基、フェニルエチル基(全ての異性体を含む)、フェニルプロピル基(全ての異性体を含む)などを挙げることができる。

上記R<sup>13</sup>及びR<sup>14</sup>は、それぞれプロピレン、1-ブテン又はイソブチレンから誘導された炭素数3~18のアルキル基、炭素数6~8のアリール基、炭素数7~8のアルキルアリール基、あるいは炭素数7~8のアリールアルキル基であることが好ましい。

具体的には、上記アルキル基としては、例えば、イソプロピル基、プロピレン 2 量体から誘導される分枝状へキシル基(全ての分枝状異性体を含む)、プロピ レン3量体から誘導される分枝状ノニル基(全ての分枝状異性体を含む)、プロ ピレン4量体から誘導される分枝状ドデシル基(全ての分枝状異性体を含む)、 プロピレン5量体から誘導される分枝状ペンタデシル基(全ての分枝状異性体を 含む)、プロピレン 6 量体から誘導される分枝状オクタデシル基(全ての分枝状 異性体を含む)、sec-ブチル基、tert-ブチル基、1-ブテン2量体か・ ら誘導される分枝状オクチル基(全ての分枝状異性体を含む)、イソブチレン2 量体から誘導される分枝状オクチル基(全ての分枝状異性体を含む)、1ーブテ ン3量体から誘導される分枝状ドデシル基(全ての分枝状異性体を含む)、イソ ブチレン3量体から誘導される分枝状ドデシル基 (全ての分枝状異性体を含む) 、 1-ブテン4量体から誘導される分枝状へキサデシル基(全ての分枝状異性体を 含む)、イソブチレン4量体から誘導される分枝状へキサデシル基(全ての分枝 状異性体を含む)などを挙げることができる。アリール基としては、例えば、フ ェニル基を挙げることができる。アルキルアリール基としては、例えば、トリル 基(全ての構造異性体を含む)、エチルフェニル基(全ての構造異性体を含む)、 キシリル基(全ての構造異性体を含む)などを挙げることができる。アリールア

ルキル基としては、例えば、ベンジル基、フェネチル基(全ての異性体を含む) などを挙げることができる。

本発明の潤滑油組成物には、前記(A)~(E)及びそれらの誘導体で示されるイオウ系添加剤の中からその内の一種の化合物を単独であるいはそれらの中から2種以上を適宜組み合わせて使用することができる。本発明では、イオウ系添加剤の含有量は、(A)~(E)及びそれらの誘導体で示される化合物に由来するイオウ元素と、他の添加剤に由来するイオウ元素とをあわせたイオウ元素濃度が潤滑油組成物全量基準で0.01~0.15質量%で、かつ(A)~(E)及びそれらの誘導体で示される化合物に由来するリン元素と、リン系添加剤のリン元素とをあわせたリン元素濃度が潤滑油組成物全量基準で0.01質量%~0.06質量%の範囲となる量であることが好ましい。イオウ系添加剤の含有量が、イオウ元素として0.01質量%未満またはリン元素として0.01質量%未満の場合は、 $\mu$  – V特性の改善に効果がなく、イオウ元素として0.15質量%を超える場合、あるいはリン元素として0.06質量%を超える場合は、酸化安定性が悪化するため、それぞれ好ましくない。

さらにより良い $\mu$  - V特性を得るためには、イオウ系添加剤の含有量は、潤滑油組成物全量基準で(A)~(E)及びそれらの誘導体で示される化合物に由来するイオウ元素と、他の添加剤に由来するイオウ元素とをあわせたイオウ濃度が潤滑油組成物全量基準で  $0.01\sim0.15$  質量%で、かつ(A)~(E)及びそれらの誘導体で示される化合物に由来するリン元素と、リン系添加剤のリン元素とをあわせたリン元素濃度が潤滑油組成物全量基準で  $0.02\sim0.05$  質量%の範囲となる量にあることが好ましい。

#### (3)(F)リン系添加剤

本発明に用いることができる(F)リン系添加剤としては、例えば、リン酸モノエステル類、リン酸ジエステル類、リン酸トリエステル類、亜リン酸モノエステル類、亜リン酸ジエステル類、亜リン酸トリエステル類、(亜)リン酸エステル類の塩、リン酸、亜リン酸、アルキルジチオリン酸亜鉛、及びこれらの混合物等が挙げられる。上記(F)成分のうち、リン酸、亜リン酸を除いたものは、通常炭素数2~30、好ましくは3~20の炭化水素基を含有する化合物である。

上記炭素数2~30の炭化水素基としては、例えば、アルキル基、シクロアルキル基、アルキルシクロアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルキルアリール基、及びアリールアルキル基を挙げることができる。

上記アルキル基としては、具体的には、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基等のアルキル基(これらのアルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい)を挙げることができる。

上記シクロアルキル基としては、具体的には、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基等の炭素数5~7のシクロアルキル基を挙げることができる。

上記アルキルシクロアルキル基としては、具体的には、メチルシクロペンチル基、ジメチルシクロペンチル基、メチルエチルシクロペンチル基、ジエチルシクロペンチル基、メチルシクロヘキシル基、メチルシクロヘキシル基、メチルエチルシクロヘキシル基、ジエチルシクロヘプチル基、ジメチルシクロヘプチル基、ジメチルシクロヘプチル基、ジェチルシクロヘプチル基、ジェチルシクロヘプチル基、ジェチルシクロヘアチル基、ジェチルシクロヘアチル基(アルキル基のシクロアルキル基への置換位置も任意である)を挙げることができる。

上記アルケニル基としては、具体的には、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、オクテニル基、ノネニル基、デセニル基、ウンデセニル基、ドデセニル基、トリデセニル基、テトラデセニル基、ペンタデセニル基、ヘキサデセニル基、ヘプタデセニル基、オクタデセニル基等のアルケニル基(これらのアルケニル基は直鎖状でも分枝状でもよく、また二重結合の位置も任意である)を挙げることができる。

上記アリール基としては、具体的には、フェニル基、ナフチル基等の炭素数6~18のアリール基を挙げることができる。

上記アルキルアリール基としては、具体的には、トリル基、キシリル基、エチルフェニル基、プロピルフェニル基、ブチルフェニル基、ペンチルフェニル基、ヘキシルフェニル基、ヘプチルフェニル基、オクチルフェニル基、ノニルフェニ

ル基、デシルフェニル基、ウンデシルフェニル基、ドデシルフェニル基等の炭素数7~18のアルキルアリール基(アルキル基は直鎖状でも分枝状でもよく、またアリール基への置換位置も任意である)を挙げることができる。

上記アリールアルキル基としては、具体的には、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基、フェニルブチル基、フェニルペンチル基、フェニルヘキシル基等の炭素数7~12のアリールアルキル基(これらのアルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい)等を挙げることができる。

(F)成分の好ましい化合物としては、具体的には、リン酸;亜リン酸;ジプ ロピルジチオリン酸亜鉛、ジブチルジチオリン酸亜鉛、ジペンチルジチオリン酸 亜鉛、ジヘキシルジチオリン酸亜鉛、ジヘプチルジチオリン酸亜鉛、ジオクチル ジチオリン酸亜鉛等のアルキルジチオリン酸亜鉛(アルキル基は直鎖状でも分枝 状でもよい);モノプロピルホスフェート、モノブチルホスフェート、モノペン チルホスフェート、モノヘキシルホスフェート、モノヘプチルホスフェート、モ ノオクチルホスフェート等のリン酸モノアルキルエステル(アルキル基は直鎖状 でも分枝状でもよい);モノフェニルホスフェート、モノクレジルホスフェート 等のリン酸モノ(アルキル)アリールエステル;ジプロピルホスフェート、ジブ チルホスフェート、ジペンチルホスフェート、ジヘキシルホスフェート、ジヘプ チルホスフェート、ジオクチルホスフェート等のリン酸ジアルキルエステル (ア ルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい);ジフェニルホスフェート、ジクレジル ホスフェート等のリン酸ジ (アルキル) アリールエステル; トリプロピルホスフ ェート、トリブチルホスフェート、トリペンチルホスフェート、トリヘキシルホ スフェート、トリヘプチルホスフェート、トリオクチルホスフェート等のリン酸 トリアルキルエステル (アルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい): トリフェニ ルホスフェート、トリクレジルホスフェート等のリン酸トリ(アルキル)アリー ルエステル;モノプロピルホスファイト、モノブチルホスファイト、モノペンチ ルホスファイト、モノヘキシルホスファイト、モノヘプチルホスファイト、モノ オクチルホスファイト等の亜リン酸モノアルキルエステル(アルキル基は直鎖状 でも分枝状でもよい);モノフェニルホスファイト、モノクレジルホスファイト 等の亜リン酸モノ(アルキル)アリールエステル;ジプロピルホスファイト、ジ

ブチルホスファイト、ジペンチルホスファイト、ジヘキシルホスファイト、ジヘプチルホスファイト、ジオクチルホスファイト等の亜リン酸ジアルキルエステル (アルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい);ジフェニルホスファイト、ジクレジルホスファイト等の亜リン酸ジ (アルキル) アリールエステル;トリプロピルホスファイト、トリブチルホスファイト、トリペンチルホスファイト、トリヘキシルホスファイト、トリペプチルホスファイト、トリオクチルホスファイト等の 亜リン酸トリアルキルエステル (アルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい);トリフェニルホスファイト、トリクレジルホスファイト等の亜リン酸トリ (アルキル) アリールエステル;及びこれらの混合物等が例示できる。

また、上記の(亜)リン酸エステル類の塩としては、具体的には、リン酸モノエステル、リン酸ジエステル、亜リン酸モノエステル、亜リン酸ジエステル等に、アンモニアや炭素数1~8の炭化水素基又は水酸基含有炭化水素基のみを分子中に含有するアミン化合物等の窒素化合物を作用させて、残存する酸性水素の一部又は全部を中和した塩等が例示できる。

ミン、ジへキサノールアミン、ジへプタノールアミン、及びジオクタノールアミン等のアルカノールアミン (アルカノール基は直鎖状でも分枝状でもよい);及びこれらの混合物等が例示できる。

本発明の自動変速機用潤滑油組成物において(F)成分を含有させる場合、その含有量は、(F)成分に由来するリン元素とその他の添加剤に由来するリン元素との合計のリン元素濃度が、組成物全量基準で $0.01\sim0.06$ 質量%となる量である。上記リン元素濃度が、0.01質量%未満の場合は、耐摩耗性に対して効果がなく、一方、その濃度が、0.06質量%を超える場合は、酸化安定性が悪化するため、それぞれ好ましくない。さらに改善された $\mu-V$ 特性を得るためには、(F)成分の含有量は、(F)成分に由来するリン元素とその他の添加剤に由来するリン元素との合計のリン元素濃度が、組成物全量基準で $0.02\sim0.05$ 質量%となる量であるのが好ましい。

## (4)(G)カルシウム系清浄剤

本発明で用いることができる(G)カルシウム系清浄剤は、その全塩基価が通常  $20\sim450\,\mathrm{mg\,KOH/g}$ 、好ましくは  $50\sim400\,\mathrm{mg\,KOH/g}$  の塩基性カルシウム清浄剤である。ここで全塩基価とは、 $\mathrm{JIS}$  K 2501 「石油製品及び潤滑油ー中和価試験法」の 7. に準拠して測定される過塩素酸法による全塩基価を意味する。

- (G) 成分の具体例としては、例えば、下記の中から選ばれる1種類又は2種類以上のカルシウム清浄剤等が挙げられる。
- (G-1) 全塩基価が20~450mgKOH/gのカルシウムスルホネート
- (G-2) 全塩基価が20~450mgKOH/gのカルシウムフェネート
- (G-3) 全塩基価が20~450mgKOH/gのカルシウムサリシレート
- (G-1)カルシウムスルホネートとしては、より具体的には、例えば分子量 100~1500、好ましくは200~700のアルキル芳香族化合物をスルホン化することによって得られるアルキル芳香族スルホン酸のカルシウム塩が好ましく用いられ、アルキル芳香族スルホン酸としては、具体的にはいわゆる石油スルホン酸や合成スルホン酸等が挙げられる。

石油スルホン酸としては、一般に鉱油の潤滑油留分のアルキル芳香族化合物を

スルホン化したものやホワイトオイル製造時に副生する、いわゆるマホガニー酸等が用いられる。また合成スルホン酸としては、例えば洗剤の原料となるアルキルベンゼン製造プラントから副生したり、ポリオレフィンをベンゼンにアルキル化することにより得られる、直鎖状や分枝状のアルキル基を有するアルキルベンゼンを原料とし、これをスルホン化したもの、あるいはジノニルナフタレンをスルホン化したもの等が用いられる。またこれらのアルキル芳香族化合物をスルホン化する際のスルホン化剤は特に制限はないが、通常発煙硫酸や硫酸が用いられる。

(G-2)カルシウムフェネートとしては、より具体的には、炭素数4~30、好ましくは6~18の直鎖状又は分枝状のアルキル基を少なくとも1個有するアルキルフェノール、このアルキルフェノールと硫黄とを反応させて得られるアルキルフェノールサルファイド、又はこのアルキルフェノールとホルムアルデヒドとを反応させて得られるアルキルフェノールのマンニッヒ反応生成物のカルシウム塩が好ましく用いられる。

(G-3) カルシウムサリシレートとしては、より具体的には、炭素数  $4 \sim 3$  0、好ましくは  $6 \sim 1$  8 の直鎖状又は分枝状のアルキル基を少なくとも 1 個有するアルキルサリチル酸のカルシウム塩が好ましく用いられる。

上記カルシウムスルホネート、カルシウムフェネート及びカルシウムサリシレートには、それらの金属塩が20~450mg KOH/gの範囲にある限りにおいて、アルキル芳香族スルホン酸、アルキルフェノール、アルキルフェノールサルファイド、アルキルフェノールのマンニッヒ反応生成物、又はアルキルサリチル酸等を、直接、酸化カルシウムや水酸化カルシウムと反応させたり、あるいは一度ナトリウム塩やカリウム塩等のアルカリ金属塩としてからカルシウム塩と置換させること等により得られる中性塩(正塩)だけでなく、さらにこれらの中性塩(正塩)と過剰のカルシウム塩や水酸化カルシウムや酸化カルシウムを水の存在下で加熱することにより得られるカルシウム塩や、炭酸ガスの存在下で中性塩(正塩)を塩基性カルシウム塩と反応させることにより得られる過塩基性カルシウム塩(超塩基性塩)も含まれる。これらの反応は、通常、溶媒(ヘキサン等の脂肪族炭化水素溶剤、キシレン等の芳香族炭化水素溶剤、軽質潤滑油基油等)中

で行われる。

なお、金属系清浄剤は通常軽質潤滑油基油等で希釈された状態で市販されており、また入手可能であるが、一般的にその金属含有量が1.0~20質量%、好ましくは2.0~16質量%のものを用いる。

本発明の自動変速機用潤滑油組成物において、(G) 成分を含有させる場合、その含有量は特に限定されないが、組成物全量基準で、0.01~5.0質量%であるのが好ましく、0.05~4.0質量%であるのがより好ましい。(G) 成分の含有量が0.01質量%未満の場合には湿式クラッチの繰り返し圧縮に対する強度低下を抑制する効果が不充分となりやすく、一方、5.0質量%を超えると組成物の酸化安定性が低下しやすくなる。

## (5)(H) ホウ酸変性コハク酸イミド

本発明に用いることができる(H)ホウ酸変性コハク酸イミドとしては、例えば炭素数40~400のアルキル基又はアルケニル基を分子中に少なくとも1個有するアルケニルコハク酸イミドをホウ酸で変性したものが挙げられ、これらの中から任意に選ばれる1種類あるいは2種類以上を配合することができる。

上記アルキル基又はアルケニル基の炭素数は40~400、好ましくは60~350である。アルキル基又はアルケニル基の炭素数が40未満の場合は化合物の潤滑油基油に対する溶解性が低下し、一方、アルキル基又はアルケニル基の炭素数が400を越える場合は、組成物の低温流動性が悪化するため、それぞれ好ましくない。

本発明で用いるコハク酸イミドとしては、より具体的には、下記の式 (7) 又は (8) で示される化合物等が例示できる。

$$R^{21} \longrightarrow N - (CH_2CH_2NH) - H \qquad (7)$$

一般式 (7) において、 $R^{21}$ は炭素数  $40\sim400$ 、好ましくは  $60\sim35$ 0のアルキル基又はアルケニル基を示し、mは  $1\sim5$ 、好ましくは  $2\sim4$ の整数を示す。

一般式 (8) において、 $R^{22}$ 及び $R^{23}$ は、それぞれ個別に、炭素数  $40 \sim 4$ 00、好ましくは  $60 \sim 350$ のアルキル基又はアルケニル基を示し、nは  $0 \sim 4$ の整数を示し、好ましくは 1、 2又は 3 である。

上記コハク酸イミドには、ポリアミンの一端に無水コハク酸が付加した式(7)で示されるいわゆるモノタイプのコハク酸イミドと、ポリアミンの両端に無水コハク酸が付加した式(8)で示されるいわゆるビスタイプのコハク酸イミドがあるが、(H)成分としては、そのいずれでも、またこれらの混合物でも使用可能である。またホウ酸変性コハク酸イミドとは、上記コハク酸イミドにホウ酸を作用させて、残存するアミノ基及び/又はイミノ基の一部又は全部を中和したり、アミド化した、いわゆるホウ酸変性化合物のことである。

本発明の自動変速機用潤滑油組成物において(H)成分を含有させる場合、その含有量は、組成物全量基準で、通常0.01~10.0質量%であり、好ましくは、0.1~7.0質量%である。(H)成分の含有量が、0,01質量%未満の場合には、充分な清浄効果が得られず、一方、10.0質量%を超える場合には、組成物の低温流動性が大幅に悪化しやすくなる。

## (6)(I)アルカリ金属ホウ酸塩若しくはその水和物

本発明で用いることができる(I)成分のアルカリ金属ホウ酸塩若しくはその水和物としては、例えば、ホウ酸リチウム水和物、ホウ酸ナトリウム水和物、ホウ酸カリウム水和物、ホウ酸ルビジウム水和物、及びホウ酸セシウム水和物などを挙げることができる。特に好ましくはホウ酸カリウム水和物である。

これらのアルカリ金属ホウ酸塩は、例えば、ホウ酸とアルカリ金属(カリウム /ナトリウム)との原子比が2.0~4.5 (ホウ素/アルカリ金属)の範囲と なるように水酸化カリウム若しくは水酸化ナトリウムとホウ酸とを水に溶解させ、 この溶液を中性のアルカリ土類金属スルホネート又はコハク酸イミド系無灰分散 剤を含む油溶液に加え、激しく撹拌して油中水型エマルジョンを作り、其れを脱 水することでホウ酸カリウム水和物もしくはホウ酸ナトリウム水和物の微粒子状 分散液として得ることができる。

本発明の金属ベルト式無段変速機用潤滑油組成物において、任意に選ばれた1種類あるいは2種類以上の(I)成分の配合比は任意であるが、潤滑油組成物全量基準でホウ素元素量として好ましくは0.002質量%以上であり、より好ましくは0.005質量%以上である。一方、潤滑油組成物全量基準でホウ素元素量として好ましくは0.1質量%以下であり、より好ましくは0.06質量%以下である。(I)成分の含有量が、潤滑油組成物全量基準でホウ素元素量として0.002質量%に満たない場合は、(A)成分配合による潤滑油組成物の金属間摩擦特性の向上効果に乏しく、一方、その含有量が、潤滑油組成物の量基準でホウ素元素量として0.1質量%を超える場合には、潤滑油組成物の貯蔵安定性が低下し易くなる。

#### (7) その他の添加剤

本発明の自動変速機用潤滑油組成物には、スクラッチ防止性能を更に高めるために、及びその他の潤滑油としての性能を維持、向上させるために種々の公知の添加剤を併用することができる。このような添加剤としては、例えば、無灰分散剤、上記(G)成分以外の金属系清浄剤、摩擦調整剤、酸化防止剤、粘度指数向上剤、消泡剤、及び腐食防止剤を挙げることができる。

#### ( J ) 無灰分散剤

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な無灰分散剤としては、潤滑油 用の無灰分散剤として通常用いられる任意の化合物が使用可能であるが、例えば 炭素数 4 0~4 0 0 のアルキル基又はアルケニル基を分子中に少なくとも 1 個有 する窒素化合物 (例えば、アミノ基及び又はイミノ基を有する化合物) 又はその 誘導体、あるいはアルケニルコハク酸イミドの変性品等が挙げられる。

上記アルキル基又はアルケニル基としては、直鎖状でも分枝状でもよいが、好ましいものとしては、具体的には、プロピレン、1ーブテン、イソブチレン等のオレフィンのオリゴマーやエチレンとプロピレンのコオリゴマーから誘導される分枝状アルキル基や分枝状アルケニル基等が挙げられる。アルキル基又はアルケニル基の炭素数は40~400、好ましくは60~350である。アルキル基又

はアルケニル基の炭素数が40未満の場合は化合物の潤滑油基油に対する溶解性が低下し、一方、アルキル基又はアルケニル基の炭素数が400を越える場合は、組成物の低温流動性が悪化するため、それぞれ好ましくない。

また、上記窒素化合物の誘導体としては、具体的には例えば、窒素化合物に炭素数2~30のモノカルボン酸(脂肪酸等)やシュウ酸、フタル酸、トリメリット酸、ピロメリット酸等の炭素数2~30のポリカルボン酸を作用させて、残存するアミノ基及び/又はイミノ基の一部又は全部を中和したり、アミド化した、いわゆる酸変性化合物、前記窒素化合物に硫黄化合物を作用させた硫黄変性化合物、及び前記窒素化合物に酸変性、硫黄変性から選ばれた2種以上の変性を組み合わせた変性化合物等が挙げられる。

本発明においては、上記無灰分散剤の中から任意に選ばれた1種類あるいは2種類以上の化合物を任意の量で含有させることができるが、通常その含有量は、潤滑油組成物全量基準で0.1~10質量%である。

#### (K) 金属系清浄剤

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な(G)成分以外の金属系清浄剤としては、潤滑油用金属系清浄剤として通常用いられる任意の化合物が使用可能であり、例えば、アルカリ金属又はアルカリ土類金属のスルホネート、フェネート、サリシレート、及びナフテネート等を挙げることができる。本発明の組成物ではこれらの化合物を単独であるいは二種類以上組み合わせて使用できる。アルカリ金属としてはナトリウムやカリウム、アルカリ土類金属としてはマグネシウム等が例示される。本発明で用いる金属系清浄剤は、具体的には、マグネシウムのスルホネート、フェネート、又はサリシレートが好ましい。なお、これらの金属系清浄剤の全塩基価及び添加量は要求される潤滑油の性能に応じて任意に選択することができる。

本発明においては、上記金属系清浄剤の中から任意に選ばれた1種類あるいは 2種類以上の化合物を任意の量で含有させることができるが、通常その含有量は、 潤滑油組成物全量基準で0.01~5質量%である。

#### (L)摩擦調整剤

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な摩擦調整剤としては、潤滑油

用の摩擦調整剤として通常用いられる任意の化合物が使用可能であるが、炭素数 6~30のアルキル基又はアルケニル基、特に炭素数 6~30の直鎖アルキル基 又は直鎖アルケニル基を分子中に少なくとも1個有する、アミン化合物、脂肪酸エステル、脂肪酸アミド、脂肪酸金属塩等が挙げられる。

アミン化合物としては、例えば、炭素数6~30の直鎖状若しくは分枝状、好ましくは直鎖状の脂肪族モノアミン、直鎖状若しくは分枝状、好ましくは直鎖状の脂肪族ポリアミン、又はこれらの脂肪族アミンのアルキレンオキシド付加物等が例示できる。脂肪酸エステルとしては、例えば、炭素数7~31の直鎖状又は分枝状、好ましくは直鎖状の脂肪酸と、脂肪族1価アルコール又は脂肪族多価アルコールとのエステル等が例示できる。脂肪酸アミドとしては、例えば、炭素数7~31の直鎖状又は分枝状、好ましくは直鎖状の脂肪酸と、脂肪族モノアミン又は脂肪族ポリアミンとのアミド等が例示できる。脂肪酸金属塩としては、例えば、炭素数7~31の直鎖状又は分枝状、好ましくは直鎖状の脂肪酸の、アルカリ土類金属塩(マグネシウム塩、カルシウム塩等)や亜鉛塩等が挙げられる。

本発明においては、これらの摩擦調整剤の中から任意に選ばれた1種類あるいは2種類以上の化合物を任意の量で含有させることができるが、通常その含有量は、潤滑油組成物全量基準で0.01~5.0質量%、好ましくは0.03~3.0質量%である。

#### (M) 酸化防止剂

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な酸化防止剤としては、フェノール系化合物やアミン系化合物等の潤滑油に一般的に使用されているものであれば使用可能である。

具体的には、2-6-ジーtert-ブチルー4-メチルフェノール等のアルキルフェノール類;メチレンー4、4ービスフェノール(2、6-ジーtert-ブチルー4-メチルフェノール) 等のビスフェノール類;フェニルーαーナフチルアミン等のナフチルアミン類、ジアルキルジフェニルアミン類;ジー2-エチルへキシルジチオリン酸亜鉛等のジアルキルジチオリン酸亜鉛類;(3、5-ジーtert-ブチルー4-ヒドロキシフェニル) 脂肪酸 (プロピオン酸等) と1価又は多価アルコール、例えばメタノール、オクタデカノール、1、6へキサ

ジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリスリトール等とのエステル等が挙げられる。

本発明においては、上記酸化防止剤の中から任意に選ばれた1種類あるいは2種類以上の化合物を任意の量を含有させることができるが、通常その含有量は、 潤滑油組成物全量基準で0.01~5.0質量%である。

## (N) 粘度指数向上剂

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な粘度指数向上剤としては、具体的には、各種メタクリル酸エステルから選ばれる1種又は2種以上のモノマーの重合体又は共重合体若しくはその水添物などのいわゆる非分散型粘度指数向上剤、又はさらに窒素化合物を含む各種メタクリル酸エステルを共重合させたいわゆる分散型粘度指数向上剤等が例示できる。その他の粘度指数向上剤の具体例としては、非分散型又は分散型エチレン-α-オレフィン共重合体(α ーオレフィンとしてはプロピレン、1ーブテン、1ーペンテン等が例示できる)又はその水素化物、ポリイソブチレン又はその水添物、スチレン-ジエン水素化共重合体、スチレン-無水マレイン酸エステル共重合体及びポリアルキルスチレン等を挙げることができる。

これらの粘度指数向上剤の分子量は、せん断安定性を考慮して選定することが好ましい。具体的には、粘度指数向上剤の数平均分子量は、例えば分散型及び非分散型ポリメタクリレートの場合では、通常 5 , 000~150 , 000 、好ましくは 5 , 000~35 , 000のもの、ポリイソブチレン又はその水素化物の場合は通常 800~5 , 000、好ましくは 1 , 000~4 , 000のもの、そしてエチレン- $\alpha$ -オレフィン共重合体又はその水素化物の場合は通常 800~150 , 000、好ましくは 3 , 000~12 , 000のものを用いる。

これらの粘度指数向上剤の中でもエチレン-α-オレフィン共重合体又はその水素化物を用いた場合には、特にせん断安定性に優れた潤滑油組成物を得ることができる。

本発明においては、これらの粘度指数向上剤の中から任意に選ばれた1種類あるいは2種類以上の化合物を任意の量で含有させることができるが、通常その含有量は、潤滑油組成物全量基準で0.1~40.0質量%である。

#### (O)消泡剤

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な消泡剤としては、潤滑油用の 消泡剤として通常用いられる任意の化合物が使用可能であるが、例えば、ジメチ ルシリコーン、フルオロシリコーン等のシリコーン類が挙げられる。本発明の潤 滑油組成物には、これらの中から任意に選ばれた1種類あるいは2種類以上の化 合物を任意の量で含有させることができるが、通常その含有量は、潤滑油組成物 全量基準で0.001~0.05質量%である。

#### (P) 腐食防止剤

本発明の自動変速機用潤滑油組成物に併用可能な腐食防止剤としては、潤滑油 用の腐食防止剤として通常用いられる任意の化合物が使用可能であるが、例えば、 ベンゾトリアゾール系、トリルトリアゾール系、イミダゾール系化合物等が挙げ られる。本発明の潤滑油組成物には、これらの中から任意に選ばれた1種類ある いは2種類以上の化合物を任意の量で含有させることができるが、通常その含有 量は、潤滑油組成物全量基準で0.01~3.0質量%である。

本発明の潤滑油組成物において、該組成物全量基準における元素分析値で、組成物中のリン、カルシウム、ホウ素、そしてイオウの質量比は、リン:カルシウム:ホウ素:イオウ=1:(0.1~2):(0.06~2):(0.2~20)である。この比は、リン:カルシウム:ホウ素:イオウ=1:(0.1~1.0):(0.1~0.8):(0.4~5.0)であることが好ましい。

潤滑油組成物中のリン元素濃度は、組成物全量基準で0.01~0.06質量%であり、好ましくは、0.02~0.05質量%である。

基油に由来するイオウ濃度は、基油中に $0\sim0.1$ 質量%であり、イオウ系添加剤に由来するイオウ濃度は $0.01\sim0.15$ 質量%である。上記各元素の質量比、リン元素濃度、及び基油中のイオウ濃度、そしてイオウ系添加剤中のイオウ濃度が、それぞれ上記の範囲以外では、 $\mu-V$ 特性が悪化し、スクラッチ現象が発生しやすくなる。

#### [産業上の利用可能性]

本発明の潤滑油組成物を用いることにより、ベルトとエレメントのμーV特性

を正勾配にしてスクラッチ現象を防止することができ、さらにμーV特性を長期間正勾配に保持することができる。従って、本発明の潤滑油組成物は、ベルトCVT等の無段変速機用として好適である。また本発明の自動変速機用潤滑油組成物は有段式の自動変速機、リミテッドスリップデフ機構を有する終減速機にも好適に使用できる。

## [発明を実施するための最良の形態]

以下に本発明を実施例及び比較例によってさらに具体的に説明するが、本発明はこれらによって何ら限定されるものではない。

## 実施例1~8及び比較例1~5

表  $1 \sim 3$  に示すような組成の本発明の潤滑油組成物(実施例  $1 \sim 8$ )及び比較用の潤滑油組成物(比較例  $1 \sim 5$ )をそれぞれ調製した。得られた組成物について、下記の $\mu - V$ 特性試験を行い、評価した。その結果を表  $1 \sim 3$  に示した。

(μ-V特性の試験方法)

μ-V特性は、下記の摩擦試験によって評価した。

装置:Falex No.6摩擦試験機

面圧: 3Mpa

油温:80℃

μ-V特性の評価:すべり速度 0.005 m/s 及び 0.020 m/s の摩擦係数値を測定し、すべり速度 (m/s) に対する摩擦係数の勾配を求める。この勾配の正負とスクラッチ現象の有無との間に相関があり、勾配値が正であればスクラッチ現象は発生しないが、負であればスクラッチ現象が発生する可能性が高い。

表 $1\sim3$ に示す結果から明らかなとおり、本発明の潤滑油組成物(実施例 $1\sim8$ )の場合には、 $\mu$ -V特性評価において全て正勾配を得ることができるが、リン、カルシウム、ホウ素、及びイオウの各元素の元素比(質量比)が、本発明で規定する範囲を満たさない比較例 $1\sim5$ の潤滑油組成物においては、 $\mu$ -V特性評価において正勾配を得ることができない。

## 表 1

			比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
	水素化分解鉱油A 1)	質量%					60
基油	水素化分解鉱油B 2)	質量%	100	100	100	100	
	溶剤精製鉱油A 3)	質量%					40
基油粘度(100℃	)	mm²/s	4.1	4.1	4.1	4.1	2.8
基油に由来する	S濃度	質量%	0.000	0.000	0.000	0.000	0.027
ポリアルキルメタ	クリレートA 4)	質量%	6	6	6	6	
ポリアルキルメタ	クリレートB <sup>5)</sup>	質量%					12
ATF添加剤パック	ァージ <sup>6)</sup>		8	8	8	8	8
無灰分散剤A 7)				1.5		1.5	
カルシウムスルン	7 <u>オネー</u> ト <sup>8)</sup>	質量%			0.09	0.09	
	チアジアゾール 9)	質量%		0.05	0.05		
	ジチオカーバメート 10)	質量%					
イオウ系法加剤	ジチオフォスフェート 11)	質量%					
1 -3 J J C MK MA H 3	トリチオフォスファイト 12)	質量%					
	ポリスルフィドA <sup>13)</sup>	質量%					
	ポリスルフィドB 14)	質量%					
	Р	質量%	0.030	0.030	0.030	0.030	0.030
元素濃度	Ca	質量%	0.000	0.000	0.011	0.011	0.000
	В	質量%	0.001	0.007	0.001	0.007	0.001
	<u>s</u>	質量%	0.000	0.018	0.019	0.001	0.027
元素比率	Р		1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
	Ca		0.00	0.00	0.36	0.36	0.00
	В		0.04	0.23	0.04	0.23	0.04
	S		0.00	0.80	0.65	0.05	0.91
<u>μ-</u> V勾配 <sup>15)</sup>			-0.0087	-0.0072	-0.0029	-0.0022	-0.0091

- 1) 水素化分解鉱油A: 基油粘度(100°C) 3.1mm²/s、イオウ含有量 <0.001質量%
- 2) 水素化分解鉱油B: 基油粘度(100°C) 4.1mm²/s、イオウ含有量 <0.001質量%
- 3) 溶剤精製鉱油A: 基油粘度(100°C) 2.1mm²/s、イオウ含有量 0.09質量%
- 4) 分散型ポリメタクリレート
- 5) 非分散型ポリメタクリレート
- 6) 無灰分散剤、リン系添加剤、酸化防止剤、希釈油等を含有 ATF添加剤パッケージ中のリン含有量 0.38質量%、ホウ素含有量 0.013質量%
- 7) ホウ酸変性ポリブテニルコハク酸イミド、ホウ素含有量 約0.5質量%
- 8) 全塩基価 300mgKOH/g、カルシウム含有量 約12質量%
- 9) イオウ含有量 36質量%
- 10)イオウ含有量 30質量%
- 11)イオウ含有量 8.8質量%、リン含有量 8.8質量%
- 12)イオウ含有量 15質量%、リン含有量 4質量%
- 13)イオウ含有量 10質量%
- 14)イオウ含有量 43質量%
- 15) Falex No.6装置:油温80℃、面圧3MPa、すべり速度0.005~0.020m/s間の勾配値

表 2

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
	水素化分解鉱油A 1)	質量%				
基油	水素化分解鉱油B <sup>2)</sup>	質量%	100	100	100	100
	溶剤精製鉱油A 3)	質量%				
基油粘度(100℃		mm²/s	4.1	4.1	4.1	4,1
基油に由来する	濃度	質量%	0.000	0.000	0.000	0.000
ポリアルキルメタ	クリレートA 4)	質量%	6	6	6	6
ポリアルキルメタ	クリレートB <sup>5)</sup>	質量%				
ATF添加剤パック			8	8	8	8
無灰分散剤A <sup>7)</sup>			1.5	1.5	1.5	1.5
カルシウムスルフ	フォネート <sup>8)</sup>	質量%	0.09	0.09	0.09	0.09
	チアジアゾール 9)	質量%	0.05	0.2		
	ジチオカーバメート 10)	質量%			0.2	
イオウ系添加剤	ジチオフォスフェート 11)	質量%				0.2
コカンボル川川	トリチオフォスファイト 12)	質量%				
	ポリスルフィドA <sup>13)</sup>	質量%				
	ポリスルフィドB 14)	質量%		•		
	Р	質量%	0.030	0.030	0.030	0.048
二事連由	Ca	質量%	0.011	0.011	0.011	0.011
元素濃度	В	質量%	0.007	0.007	0.007	0.007
	S	質量%	0.019	0.073	0.061	0.036
元素比率	Р		1.00	1.00	1.00	1.00
	Ca		0.36	0.36	0.36	0.23
	В		0.23	0.23	0.23	0.14
	S		0.65	2.45	2.05	0.76
μ-V勾配 <sup>15)</sup>			0.002	0.004	0.004	0.003

<sup>1)~15)</sup>は表1の脚注と同じ

表 3

			実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
	水素化分解鉱油A 1)	質量%				60
基油	水素化分解鉱油B <sup>2)</sup>	質量%	100	100	100	
	溶剤精製鉱油A <sup>3)</sup>	質量%				40
基油粘度(100℃)		mm²/s	4.1	4.1	4.1	2.8
基油に由来する		質量%	0.000	0.000	0.000	0.027
ポリアルキルメタ		質量%	6	6	6	
ポリアルキルメタ		質量%				10
ATF添加剤パック	ァージ <sup>6)</sup>		8	8	8	8
無灰分散剤A 7)			1.5	1.5	1.5	1.5
カルシウムスルフ	7ォネート <sup>8)</sup>	質量%	0.09	Ó.09	0.09	0.09
	チアジアゾール <sup>9)</sup>	質量%				0.05
	ジチオカーバメート 10)	質量%			- · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	
イオウ系添加剤	ジチオフォスフェート 11)	質量%				
14 人术放风用	トリチオフォスファイト 12)	質量%	0.23			
	ポリスルフィドA <sup>13)</sup>	質量%		0.3		
	ポリスルフィドB <sup>14)</sup>	質量%			0.07	
	P	質量%	0.040	0.030	0.030	0.030
元素濃度	Ca	質量%	0.011	0.011	0.011	0.011
TIDE IDE	В	質量%	0.007	0.007	0.007	0.007
·	S	質量%	0.036	0.033	0.031	0.047
元素比率	Р		1.00	1.00	1.00	1.00
	Ca		0.27	0.36	0.36	0.36
	В		0.17	0.23	0.23	0.23
	S		0.90	1.10	1.05	1.55
μ-V勾配 <sup>15)</sup>			0.005	0.006	0.002	0.004

<sup>1)~15)</sup>は表1の脚注と同じ

## 比較例6~7

表4に示すような比較用の潤滑油組成物(比較例6~7)を調製した。得られた組成物と上記で得た実施例1とを用いて、一定時間走行前後(酸化劣化前後)の潤滑油の $\mu$  – V特性を評価した。潤滑油組成物の酸化劣化処理はJ I S K 2 5 1 4 に記載の I S O T の方法に準拠し、油温 1 6 5 . 5  $\mathbb C$ 、時間 1 5 0 時間の条件で実施した。その評価結果を表 4 に示す。

表4に示す結果から明らかな通り、実施例1の組成物は酸化劣化後もμ-V特性が正勾配を維持しているのに対して、基油に由来するイオウ濃度が高い比較例6の組成物および添加剤に由来するイオウ濃度が高い比較例7の組成物は酸化劣化後にはμ-V特性が悪化して負勾配を示している。

#### 表 4

		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	実施例1	比較例6	比較例7
	水素化分解鉱油B 1)	質量%	100		100
基油	溶剤精製鉱油A <sup>2)</sup>	質量%			
	溶剤精製鉱油B 3)	質量%		100	
基油粘度(100℃		mm²/s	4.1	4.1	4.1
基油に由来するの	<b>鴻</b> 度	質量%	0.000	0.150	0.000
ポリアルキルメタ		質量%	6	6	6
ポリアルキルメタ		質量%			
ATF添加剤パック	rージ <sup>6)</sup>		8	8	8
無灰分散剤A <sup>7)</sup>			1.5	1.5	1.5
カルシウムスルフ		質量%	0.09	0.09	0.09
	チアジアゾール <sup>9)</sup>	質量%	0.05	0.05	0.4
	ジチオカーバメート 10)	質量%			
イオウ系添加剤	ジチオフォスフェート 11)	質量%			
1.2 2 2/2/2007/14	トリチオフォスファイト 12)	質量%			
	硫化オレフィン 13)	質量%			
	ポリスルフィド 14)	質量%			
	P	質量%	0.030	0.030	0.030
元素濃度	Ca	質量%	0.011	0.011	0.011
	B	質量%	0.007	0.007	0.007
	S	質量%	0.019	0.169	0.145
	Р		1.00	1.00	1.00
元素比率	Ca		0.36	0.36	0.36
	В		0.23	0.23	0.23
	S		0.65	5.65	4.85
μ-V勾配 <sup>15)</sup>			0.002	0.003	0.002
ISOT後の μ −V勾	配 16)		0.002	-0.004	-0.002

- 1) 水素化分解鉱油B: 基油粘度(100°C) 4.1mm²/s、イオウ含有量 <0.001質量%
- 2) 溶剤精製鉱油A: 基油粘度(100°C) 2.1mm²/s、イオウ含有量 0.09質量%
- 3) 溶剤精製鉱油B: 基油粘度(100℃) 4.1mm<sup>2</sup>/s、イオウ含有量 0.16質量%
- 4) 分散型ポリメタクリレート
- 5) 非分散型ポリメタクリレート
- 6) 無灰分散剤、リン系添加剤、酸化防止剤、希釈油等を含有 ATF添加剤パッケージ中のリン含有量 0.38質量%、ホウ素含有量 0.013質量%
- 7) ホウ酸変性ポリブテニルコハク酸イミド、ホウ素含有量 約0.5質量%
- 8) 全塩基価 300mgKOH/g、カルシウム含有量 約12質量%
- 9) イオウ含有量 36質量%
- 10)イオウ含有量 30質量%
- 11)イオウ含有量 8.8質量%、リン含有量 8.8質量%
- 12)イオウ含有量 15質量%、リン含有量 4質量%
- 13)イオウ含有量 10質量%
- 14)イオウ含有量 43質量%
- 15) Falex No.6装置: 油温80℃、面圧3MPa、すべり速度0.005~0.020m/s間の勾配値
- 16) Falex No.6装置: 油温80℃、面圧3MPa、すべり速度0.005~0.020m/s間の勾配値 ISOT(165.5℃、150h)処理後の劣化油にて評価

#### 請求の範囲

- 1. 組成物全量基準における元素分析値で、リン:カルシウム:ホウ素:イオウの元素比が、質量比で、1:(0.1~2):(0.06~2):(0.2~20)であり、かつ組成物全量基準におけるリン元素濃度が0.01~0.06質量%であり、基油に由来するイオウ濃度が0~0.1質量%、そしてイオウ系添加剤に由来するイオウ濃度が0.01~0.15質量%であることを特徴とする自動変速機用潤滑油組成物。
- 2. 組成物全量基準における元素分析値で、リン:カルシウム:ホウ素:イオウの元素比が、質量比で、 $1:(0.1\sim1):(0.1\sim0.8):(0.4\sim5)$ であり、かつ組成物全量基準におけるリン元素濃度が $0.02\sim0.05$ 質量%であり、基油に由来するイオウ濃度が $0\sim0.1$ 質量%、そしてイオウ系添加剤に由来するイオウ濃度が $0.01\sim0.15$ 質量%であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の潤滑油組成物。
- 3. イオウ系添加剤が、(A) チアジアゾール及び/またはベンゾチア ゾール、(B) ジチオカーバメート、(C) ジチオホスフェート、(D) トリチオ ホスファイト、(E) ポリスルフィド、及び (A) ~ (E) の誘導体から選ばれ る少なくとも1種の化合物であることを特徴とする請求の範囲第1項又は第2項 に記載の潤滑油組成物。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP02/07207

	CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> C10M171/00, 135/18, 135/20, 135/36, 137/02, 137/10// C10N10:04, 40:04				
According t	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
	S SEARCHED				
	Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  Int.Cl <sup>7</sup> ClOM171/00, 125/06, 125/22-125/26, 135/00-139/00,  151/00-153/04, 155/04, 159/20-159/24, ClON10:04, 40:04				
	tion searched other than minimum documentation to the uvo Shinan Koho 1922–1996				
Koka	i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koh	0 1996–2002		
Electronic d	lata base consulted during the international search (nam	e of data base and, where practicable, sea	rch terms used)		
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
Х	WO 00/29523 A1 (Japan Energy 25 May, 2000 (25.05.00), Claims: examples & EP 1055722 A1	Corp.),	1-3		
x	EP 770669 A2 (The Lubrizol Corp.), 02 May, 1997 (02.05.97), Claims; examples & AU 9665820 A & US 5635459 A & CA 2188362 A1 & JP 9-165592 A				
X EP 798367 A2 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 01 October, 1997 (01.10.97), Claims; examples & JP 9-263782 A & US 6051536 A			1-3		
× Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
* Special categories of cited documents:  "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" earlier document but published on or after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  "O" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed  Date of the actual completion of the international search 04 October, 2002 (04.10.02)  "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family  Date of mailing of the international search report 29 October, 2002 (29.10.02)					
	Name and mailing address of the ISA/  Japanese Patent Office  Authorized officer				
Facsimile No		Telephone No.			

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP02/07207

ategory*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant	ant passages	Relevant to claim No
х	EP 218086 A2 (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 15 April, 1987 (15.04.87), Claims; examples & JP 62-53398 A & US 4704215 A & CA 1267134 A & KR 9000896 B1 & DE 3687106 T2		1-3
x	JP 2001-89779 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd 03 April, 2001 (03.04.01), Claims; examples (Family: none)	.),	1-3
j			
	-		

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1998)

国際出願番号 PCT/JP02/07207

		<del></del>	
A. 発明の原	属する分野の分類(国際特許分類(IPC))		
	C10M 171/00, 135/18, 13 /C10N 10:04, 40:04	85/20, 135/36, 137/02	, 137/10
   B. 調査を行	テった分野		
	最小限資料(国際特許分類(IPC))		
	C10M 171/00, 125/06, 12	25/22-125/26, 135/00	-139/00,
	151/00-153/04, 15	55/04, 159/20-159/24	
	C10N 10:04, 40:04		
E. J. 170 20c 401 N. J.	1 ~ 70 WI 50 + /		
取小似其代处外	トの資料で調査を行った分野に含まれるもの		
日本国人則 1	所案公報 1922-1996年 其用新案公報 1971-2002年		
日本国登録3	E用新案公報 1994-2002年		
日本国実用籍	新案登録公報 1996-2002年		
<b></b>			
国際調査で使用	<b>目した電子データベース(データベースの名称、</b>	調査に使用した用語)	
C. 関連する	ると認められる文献		
引用文献の			関連する
カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	さは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
X	WO 00/29523 A1 (株	式会社ジャパンエナジー)。	1 - 3
	2000.05.25,		
	こうこう: 50. 20,   請求の範囲,実施例		
	&EP 1055722 A1		
	WEF 1033722 AI		
<u> </u>			
☑ C欄の続き	とにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。
* 引用文献の	<b>ハカテゴリー</b>	の日の後に公表された文献	
	車のある文献ではなく、一般的技術水準を示す。	「T」国際出願日又は優先日後に公表さ	された女酔であって
もの		出願と矛盾するものではなく、	
	<b>頂日前の出願または特許であるが、国際出願日</b>	の理解のために引用するもの	C 71 - 7 MINISTER CONTENTS
以後にな	公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、	当該文献のみで発明
	E張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行	の新規性又は進歩性がないと考え	
	(は他の特別な理由を確立するために引用する	「Y」特に関連のある文献であって、	当該文献と他の1以
	理由を付す)	上の文献との、当業者にとって	
	はる開示、使用、展示等に言及する文献 頭日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	よって進歩性がないと考えられる	5 <i>5</i> 0
「「」 国际山脈	8 日 H J C C A J 区 万 性 U 土 版 U	「&」同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了	「した日	国際調査報告の発送日	
	04.10.02	25.2	J.02
	D名称及びあて先 3体数章 (ISA (IB)	特許庁審査官(権限のある職員)	4V 9280
	国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915	山本 昌広 印	' <del>  </del>
	東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3483		
<b>米</b> .水石		电印度な 03-3561-1101	r y RPR 3483

様式PCT/ISA/210 (第2ページ) (1998年7月)

#### 国際調査報告

国 5 次 则 主	
関連すると認められる文献	関連する
引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	静求の範囲の番号
EP 770669 A2 (THE LUBRIZOL CORPORATION), 1997. 05. 02, Claims, Examples &AU 9665820 A &US 5635459 A &CA 2188362 A1 &JP 9-165592 A	1 - 3
EP 798367 A2 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.), 1997. 10. 01, Claims, Examples &JP 9-263782 A &US 6051536 A	1-3
EP 218086 A2 (IDEMITSU KOSAN COMPANY LIMITED), 1987. 04. 15, Claims, Examples & JP 62-53398 A & US 4704215 A & CA 1267134 A & KR 9000896 B1 & DE 3687106 T2	1-3
JP 2001-89779 A (出光興産株式会社), 2001.04.03, 特許請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-3
	関連すると認められる文献

様式PCT/ISA/210 (第2ページの続き) (1998年7月)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)